

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **06001728 A**

(43) Date of publication of application: **11 . 01 . 94**

(51) Int. Cl
C07C 15/24
B01J 29/28
C07C 5/27
// C07B 61/00

(21) Application number: **04180525**

(22) Date of filing: **16 . 06 . 92**

(71) Applicant: **MITSUBISHI KASEI CORP**

(72) Inventor: **MASUYAMA TETSUO**
NAKANISHI AKIO

(54) **ISOMERIZATION OF DIAKYLNAPHTHALENE**

(57) Abstract:

PURPOSE: To efficiently obtain a dialkyl-naphthalene isomer mixture in the same group by carrying out isomerization at a specified temperature in the presence of a zeolite-based catalyst with large pore size to substantially suppress both intergroup isomerization and disproportionation.

CONSTITUTION: At least one kind of dialkyl-naphthalene isomer is made to react at 80-180°C in the presence of a zeolite-based catalyst having a pore size corresponding to 12-membered oxygen ring (pref. zeolite beta or ultrastable Y-type zeolite). When the 2,6-group isomers (1,5-, 1,6-, and 2,6- dialkyl-naphthalenes) are used as the isomers, the isomer mixture containing the useful 2,6-isomer at very high concentrations can be obtained.

COPYRIGHT: (C)1994,JPO&Japio

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-1728

(43)公開日 平成6年(1994)1月11日

(51)Int.Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 7 C 15/24		9280-4H		
B 0 1 J 29/28	X	9343-4G		
C 0 7 C 5/27				
// C 0 7 B 61/00	3 0 0			

審査請求 未請求 請求項の数3(全 7 頁)

(21)出願番号 特願平4-180525

(22)出願日 平成4年(1992)6月16日

(71)出願人 000005968

三菱化成株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目5番2号

(72)発明者 増山 鉄男

神奈川県横浜市緑区鴨志田町1000番地 三
菱化成株式会社総合研究所内

(72)発明者 中西 章夫

神奈川県横浜市緑区鴨志田町1000番地 三
菱化成株式会社総合研究所内

(74)代理人 弁理士 木邑 林

(54)【発明の名称】 ジアルキルナフタレンの異性化法

(57)【要約】

【構成】 ジアルキルナフタレン異性体の少なくとも一種を異性化する際に、大孔径のゼオライト系触媒の存在下、80~180℃の温度で異性化反応を行なう方法。

【効果】 族間異性化反応及び不均化反応が大幅に抑制され、同族内のジアルキルナフタレン異性体混合物が効率よく得られる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 ジアルキルナフタレン異性体の少なくとも一種を、酸素12員環以上の孔径を有するゼオライト系触媒の存在下において、80～180℃の温度で反応させることを特徴とするジアルキルナフタレンの異性化法。

【請求項2】 ジアルキルナフタレン異性体が、1,5-ジアルキルナフタレン、1,6-ジアルキルナフタレン及び2,6-ジアルキルナフタレンから選ばれた少なくとも一種である請求項1記載のジアルキルナフタレンの異性化法。

【請求項3】 酸素12員環以上の孔径を有するゼオライト系触媒がゼオライトベータ又は超安定Y型ゼオライトである請求項1記載のジアルキルナフタレンの異性化法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明はジアルキルナフタレンの異性化法に関するものである。詳しくは、2,6-ジアルキルナフタレン、特に2,6-ジメチルナフタレンを工業的に有利に製造するために好適なジアルキルナフタレンの異性化法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】ジアルキルナフタレンには多数の異性体が存在する。例えば、ジメチルナフタレンには10種類の異性体が存在するが、これらの異性体は、次の(I), (I I), (I I I)及び(I V)の4つの族に分類することができ、一般に各族内で行なわれる族内異性化反応は比較的容易であるのに対して、他の族への族間異性化反応は生起し難いことが知られている(例えば、触媒 Vol. 33 No. 8 1991 559～565頁)。

(I) :1,5-, 1,6-及び2,6-ジメチルナフタレンのグループ(以下2,6族と略記)

(I I) :1,7-, 1,8-及び2,7-ジメチルナフタレンのグループ(以下2,7族と略記)

(I I I) :1,3-, 1,4-及び2,3-ジメチルナフタレンのグループ(以下2,3族と略記)

(I V) :1,2-ジメチルナフタレンのグループ(以下1,2族と略記)

【0003】ところで、ジメチルナフタレンの主要な用途の一つはナフタレンジカルボン酸の製造であり、原料物質として特に2,6-ジメチルナフタレンが好んで用いられる。2,6-ジメチルナフタレンを得る場合、一般にジメチルナフタレン異性体混合物を主成分として含む原料油から2,6-ジメチルナフタレンを分離するが、2,6-ジメチルナフタレン分離後のラフィネートの活用を図るためには、他の族から2,6族への異性化が必要となる。このような異性化反応には、各種のゼオライト系触媒を使用する方法が提案されている(特開昭59-88433号公報)。しかし、これらの方法では、2,6-異性体の全異性体中に占め

る熱力学的平衡濃度が14%程度に過ぎないため、2,6-異性体を得る方法としては必ずしも効率的ではない。

【0004】一方、ジアルキルナフタレン、特にジメチルナフタレンをアルキルベンゼンから製造する方法が提案されている(特表平3-500052号公報)。即ち、アルキルベンゼンをブテン類、ブタジエン、プロピレン、エチレン等と反応させて直鎖部分の炭素数が2～6程度のアシル鎖を形成させ、環化、脱水素を経てナフタレン環を形成させる方法であり、その方法によっては、同族内だけで異性化する方法が併用される。この族内異性化を実施できれば、例えば、2,6-ジメチルナフタレン濃度を2,6族内での熱力学的濃度まで高めることができる。従って、この異性体混合物を原料として2,6族内だけの異性化を実施すれば、2,6-ジメチルナフタレンの2,6族内での熱力学的平衡濃度は約50%という高濃度になるので工業の実施上極めて有利である。

【0005】2,6族内だけで異性化を制御する試みとしては、触媒として水素型モルデナイトと酸性白土の混合物を用いる方法(特公昭55-47020号公報)や、アルミノボロシリケートを用いる方法(特表平1-503389号公報)が提案され、一般的には、族内異性化反応が優先するものの、族間の異性化や、他の不均化、トランスアルキル化等の副反応を制御することは非常に困難であった。

【0006】また、前記の特表平3-500052号公報には、ベータゼオライト、Y-タイプ超安定ゼオライト等の触媒を用い、温度約200～300℃、特に240～280℃において2,6族内での異性化を行なう方法が記載されている。この方法は、反応温度が高く、ジメチルナフタレンの沸点(約260～280℃)近傍で異性化を行なうので、反応系を液相に保持するため系内を加圧にすることを要する場合がある。更に上記温度では、反応中にコーク質が触媒に付着して汚染され易く、触媒活性が速やかに低下する等の問題がある。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、ジアルキルナフタレンの異性化を容易な操作で実施し得ると共に、触媒ライフを延長し、しかも同族内の異性化反応が優先的に進行し、族間の異性化や、他の不均化、トランスアルキル化等の副反応を極力抑制することのできる異性化反応を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するため、本発明者等は同一族内のジアルキルナフタレンの熱力学的平衡と異性化温度との関係について検討を行なった。例えば、温度100～450℃における2,6族内の2,6-異性体の熱力学的平衡濃度の実測したところ、2,6-異性体の熱力学的平衡濃度は低温度側ほど高いことが判明した。

【0009】そして、2,6族内における2,6-, 1,6-及び1,5-各異性体分布の温度依存性は、250～450℃における

実測値をもとに最小2乗法によって求めた次の(1)、(2)及び(3)の推算式で表わされることを見出した。

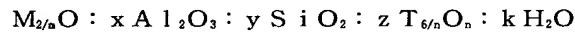
$$2,6\text{-異性体: } C_{2,6} = 56.9775 - 0.02835T \quad \text{--- (1)}$$

$$1,6\text{-異性体: } C_{1,6} = 39.1240 - 0.01781T \quad \text{--- (2)}$$

$$1,5\text{-異性体: } C_{1,5} = 3.8085 - 0.01076T \quad \text{--- (3)}$$

式(1)、(2)及び(3)において、 $C_{2,6}$ 、 $C_{1,6}$ 、 $C_{1,5}$ は、各異性体の族内モル%を示し、 T は温度(℃)を示す。

【0010】以上の知見に基づき、低温側領域での異性化反応につき更に検討を重ねた結果、従来の予測を超える80~180℃という低温度で異性化反応を行なうときは、2,6-異性体を著しく高濃度で含有する異性体混合物を容易に得ることができ、汚染による触媒の活性低下も少なく、しかも2,6族以外の2,7族、2,3族、1,2族等への族間異性化が大幅に抑制されることを見出し本発明に到達した。即ち、本発明の要旨は、ジアルキルナフタレ*



(式中Mは原子価mを有する少なくとも一種のアルカリ金属又はアルカリ土類金属を表わし、 T は+ n 価の電荷を有するアルミニウム、ガリウム、ホウ素、鉄、リン、チタン、亜鉛及びニッケルの少なくとも一種を表わし、 x 、 y 、 z 、 m 及び n は0を含む正数を表わす)

【0013】異性化触媒は粉末状で用いてもよいが、ペーサイト、アルミナ、カオリンシリカ等の結合剤を、触媒に対して5~50重量%、好ましくは10~30重量%程度混合し、粒径0.5~5mm程度の粒状、ペレット状、球状等に成形して使用することもできる。また、触媒の比表面積は一般に200~700 m^2/g の範囲から選ばれる。なお、長時間使用して活性の低下した触媒は、酸素含有ガスによる酸化処理、あるいは水素含有ガスによる水素化処理によって再生することができる。

【0014】異性化反応は、ジメチルナフタレンを上記触媒と混合し、要すれば、窒素、アルゴン等の不活性ガスあるいは水素ガスの存在下、液相で加熱することによって実施される。反応形式としては、懸濁床方式、固定床方式、トリクルベッド方式等の種々の方式が採用され、異性化反応に不活性な脂肪族炭化水素、単環芳香族炭化水素、脂環炭化水素類を溶媒として用いることもできる。

【0015】本発明の最も特異とする点は、上述の異性化反応を80~180℃の温度で実施することである。即ち、前述のように、従前の2,6族内のジメチルナフタレンの異性化反応では、専ら約200~300℃、特に240~280℃の温度が最適であるとされていたが、本発明においては、これより遥かに低温度を採用するものであり、これに伴って反応系を常圧下で液相に保持することが容易となる上、保温、加熱等のエネルギーコストの節減に役立つ。200℃以上の高温下での異性化では、コーク質により触媒が汚染されて触媒の活性低下が著しいが、本発明の温度条件下ではこのような支障を生じることがなく、触媒の活性低下は大幅に低減される。

*ン異性体の少なくとも一種を、酸素12員環以上の孔径を有するゼオライト系触媒の存在下において、80~180℃の温度で反応させることを特徴とするジアルキルナフタレンの異性化法に存する。

【0011】本発明を2,6族内のジメチルナフタレンの異性化方法について詳細に説明するに、異性化用触媒としては、通常DMNの異性化に用いられる大口径のゼオライト、即ち、酸素12員環以上の孔径を有するゼオライト系触媒が使用される。例えば、ゼオライトベータ、超安定Y型ゼオライト、Y型ゼオライト、X型ゼオライト、ZSM-3、ZSM-4、ZSM-20が挙げられ、中でも、ゼオライトベータ、超安定Y型ゼオライト及びY型ゼオライト等が好ましい。

【0012】これらのゼオライトは次式で示される組成を有し、通常プロトン型にして異性化反応に供される。

【0016】また、前述のように、2,6族における2,6-異性体の熱力学的平衡濃度は低温度側ほど高いから、本発明によれば、目的とする2,6-異性体を著しく高濃度で含有するジメチルナフタレンの異性体混合物を得ることができると共に、2,7族、2,3族、1,2族等の他の族への族間異性化が大幅に抑制され、加えて、ジメチルナフタレンのモノメチルナフタレンやトリメチルナフタレン等への不均化反応も阻止することができ、極めて効率よく族内異性化反応を遂行することができる。更に、2,6-異性体を連続的に製造する場合、リサイクル量が低減でき工業的实施上有利である。なお、以上は、本発明を2,6族内のジメチルナフタレンの異性化に適用した場合について説明したが、2,7族内及び2,3族内のジメチルナフタレン及びジメチル以外のジアルキルナフタレンの異性化にも同様に適用することができる。

【0017】

【実施例】以下本発明を実施例について更に詳細に説明するが、本発明はその要旨を超えない限りこれ等の実施例に限定されるものではない。なお、以下の例における、触媒濃度、反応時間、反応原料中の異性体(A)の平衡到達転化率(XAe)、反応生成物中の異性体(B)の平衡到達率(YBe)は、それぞれ次の意味を表わす。また、ジメチルナフタレン、モノメチルナフタレン及びトリメチルナフタレンは、それぞれDMN、MMN及びTMNと略記する。

【0018】☆触媒濃度 = (触媒重量) / (原料DMN重量 + 触媒) × 100(重量%)

☆反応時間 = 反応設定温度到達時を反応開始($t=0$)とする。

☆平衡到達転化率(XAe) = $[1 - (CAP - CAEQ) / (CAF - CAEQ)] \times 100(\%)$

[CAP : 生成物中の異性体Aの2,6族内濃度(%)]

[CAF : 原料中の異性体Aの2,6族内の濃度(%)]

50 [CAEQ : 反応温度における異性体Aの2,6族内の平衡濃度

(%)]

☆平衡到達率(YBe) = $CBP / CBEQ \times 100(\%)$

[CBP:生成物中の異性体Bの2,6族内濃度(%)]

[CBEQ:反応温度における異性体Bの2,6族内の平衡濃度(%)]

【0019】実施例1

触媒としてゼオライトベータ(PQコーポレーション製シリカアルミナ比25のH型品)を用い、反応供与前に窒素気流下400℃で2時間焼成して脱水した。ガラス製の反応器に上記触媒1.99 g及び2,6-DMN(純度99.9%)8.09 gを仕込み(触媒濃度19.7%)、窒素雰囲気中で攪拌しながら常圧下170℃で異性化反応を行なった。反応開始から3時間後の2,6族内の組成は、2,6-DMN 51.9%、1,6-DMN 42.4%、1,5-DMN 5.7%であり、平衡到達転化率(XAe)は100.5%、1,5-DMNの平衡到達率は100.5%であった。なお、2,6族以外のDMN異性体の生成は無く、MMN及びTMNへの不均化ロス合計は0.3%であった。

【0020】実施例2

実施例1において、2,6-DMNの代りに1,5-DMN(純度99.96%)を用いた以外は、実施例1と同様に異性化反応を実施した。反応開始から3時間後及び5時間後の2,6族内の組成、平衡到達転化率(XAe)及び2,6-DMNの平衡到達率等を表1に示した。なお、2,6族以外のDMN異性体の生成は無く、MMN及びTMNへの不均化ロス合計は少量であった。

【0021】実施例3

(4)

特開平6-1728

* 実施例1において、反応温度を150℃とした以外は、実施例1と同様に異性化反応を実施した。反応開始から3時間後及び5時間後の2,6族内の組成、平衡到達転化率(XAe)及び1,5-DMNの平衡到達率等を表1に示した。なお、2,6族以外のDMN異性体の生成は無く、MMN及びTMNへの不均化ロス合計は少量であった。

【0022】実施例4

実施例1において、触媒の使用量を3.83 gとし、2,6-DMN(純度99.9%)の使用量を9.12 g(触媒濃度29.6%)とし、かつ反応温度を150℃とした以外は、実施例1と同様に異性化反応を実施した。反応開始から3時間後の2,6族内の組成、平衡到達転化率(XAe)及び1,5-DMNの平衡到達率等を表1に示した。なお、2,6族以外のDMN異性体の生成は無く、MMN及びTMNへの不均化ロス合計は少量であった。

【0023】実施例5

実施例1において、触媒の使用量を2.19 gとし、2,6-DMN(純度99.9%)の使用量を9.07 g(触媒濃度19.4%)とし、かつ反応温度を130℃とした以外は、実施例1と同様に異性化反応を実施した。反応開始から3時間後、5時間後及び7.5時間後における2,6族内の組成、平衡到達転化率(XAe)及び1,5-DMNの平衡到達率等を表1に示した。

【0024】

【表1】

*

	実 施 例								
	1	2	3	4	5				
原 料	2,6-DMN	1,5-DMN	2,6-DMN	2,6-DMN	2,6-DMN				
触媒濃度(wt%)	19.7	20.0	19.6	29.6	19.4				
反応温度(℃)	170	170	150	150	130				
反応時間(h r)	3	3	5	3	5	3	3	5	7.5
生成物分布(wt%)									
MMN	0.2	0.2	0.3	0.1	0.0	0.3	0.0	0.0	0.0
2,6族DMN	99.7	99.8	97.9	99.7	99.8	98.6	100.0	100.0	100.0
2,6族以外DMN	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
ナフタレン	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
TMN	0.1	0.0	1.8	0.2	0.2	1.1	0.0	0.0	0.0
その他	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
2,6族内DMN分布(%)									
2,6-DMN	51.9	50.0	52.1	52.5	52.2	53.1	63.2	57.9	55.2
1,6-DMN	42.4	42.5	41.7	42.4	42.2	41.3	35.4	39.8	41.4
1,5-DMN	5.7	7.6	6.2	5.1	5.6	5.7	1.5	2.3	3.4
平衡到達転化率(%)	100.5	98.0	99.4	100.5	101.1	99.3	78.9	90.2	95.9
(*)平衡到達率(%)	100.5	95.8	99.9	94.5	103.9	104.2	28.0	44.8	64.7

【0025】表1中の(*)印は、2,6-DMN原料では生成1,5-DMNの平衡到達率を示し、1,5-DMN原料では生成2,6-DMNの平衡到達率を示す。表1に示すように、反応温度が170℃及び150℃とした場合(実施例1～4)、生成物の殆んどが2,6族内異性体であって、2,6族以外のDMN異性体や、ナフタレン、MMN、TMN等の不均化生成物の生成量は極めて微量である。また、2,6族内の2,6-DMNの平衡濃度は50%以上と高く、2,6族内の平衡も早期に達成される。また、反応温度が130℃の場合(実施例5)は、2,6族内の平衡到達速度は若干遅いものの、2,6族以外のDMN異性体や不均化生成物の生成は全く認められない。

【0026】実施例6

触媒としてH型超安定Y型ゼオライト(H-USY 東ソー社製 TSZ-330HSC, シリカアルミナ比:6.4 顆粒品)を用い、反応供与前に粉碎し、窒素気流下400℃で3時間焼成して脱水した。ガラス製の反応器に上記触媒1.02 g及び2,6-DMN(純度99.9%)9.01 gを仕込み(触媒濃度10.2%)、窒素雰囲気中で攪拌しながら常圧下170℃で異性化反応を行なった。反応開始から3時間後及び5時間後における2,6族内の組成、平衡到達転化率(XAe)及び1,5-DMNの平衡到達率等を表2に示した。

【0027】実施例7

実施例6において、触媒の使用量を2.22 gとし、2,6-DM

* N(純度99.9%)の使用量を9.03 g(触媒濃度19.7%)とし、かつ反応温度を150℃とした以外は、実施例6と同様に異性化反応を実施した。反応開始から3時間後及び5時間後における2,6族内の組成、平衡到達転化率(XAe)及び1,5-DMNの平衡到達率等を表2に示した。

【0028】実施例8

実施例6において、2,6-DMNの代りに1,5-DMN(純度99.96%)8.13 gを用い、触媒の使用量を3.41 g(触媒濃度29.5%)とし、かつ反応温度を100℃とした以外は、実施例6と同様に異性化反応を実施した。反応開始から5時間後、11時間後及び20時間後における2,6族内の組成、平衡到達転化率(XAe)及び2,6-DMNの平衡到達率等を表2に示した。

【0029】比較例1

実施例6において、触媒の使用量を1.00 gとし、2,6-DMN(純度99.9%)の使用量を9.00 g(触媒濃度10.0%)とし、かつ反応温度を250℃とした以外は、実施例6と同様に異性化反応を実施した。反応開始から3時間後及び5時間後における2,6族内の組成、平衡到達転化率(XAe)及び1,5-DMNの平衡到達率等を表2に示した。

【0030】

【表2】

	実 施 例							比 較 例	
	6		7		8			1	
原 料	2,6-DMN		2,6-DMN		1,5-DMN			2,6-DMN	
触媒濃度(wt%)	10.2		19.7		29.5			10.0	
反応温度(℃)	170		150		100			250	
反応時間(h r)	3	5	3	5	5	11	20	3	5
生成物分布(wt%)									
ナフタレン	0.3	0.4	0.5	0.6	0.0	0.0	0.3	—	—
MMN	9.0	9.6	0.5	11.2	1.0	2.3	4.1	*43.9	*46.5
2,6族DMN	78.6	75.5	70.3	66.8	95.4	95.3	90.6	41.1	35.9
2,6族以外DMN	2.2	2.6	4.7	5.7	0.1	0.7	1.3	12.4	14.3
TMN	9.4	11.0	12.5	14.0	0.3	1.1	2.9	—	—
その他	0.6	0.8	1.6	1.8	0.2	0.6	0.8	2.7	3.3
2,6族内DMN分布(%)									
2,6-DMN	52.8	52.3	53.6	52.7	16.3	27.2	36.6	48.4	48.7
1,6-DMN	42.2	42.6	41.5	42.0	30.7	37.4	41.3	45.0	44.7
1,5-DMN	5.0	5.1	4.9	5.3	53.0	35.4	22.1	6.6	6.6
平衡到達転化率(%)	98.6	99.6	98.1	100.1	49.4	67.9	81.9	103C.0	102.5
(*)平衡到達率(%)	87.9	89.7	90.1	97.0	30.1	50.3	67.7	99.5	100.4

【0031】表2中の*印は、MMNとTMNとの合計量を示し、(*)印は、2,6-DMN原料では生成1,5-DMNの平衡到達率を示し、1,5-DMN原料では生成2,6-DMNの平衡到達率を示す。表2に示すように、反応温度を250℃とした場合(比較例1)は、2,6族内の平衡は早期に達成されるものの、2,6族以外のDMN異性体(12.4~14.3%)や不均化生成物(46.6~49.8%)が多量に生成する。また、反応温度が250℃と高温であるため、2,6族内の2,6-DMNの平衡濃度(48.4~48.7%)が低い。

【0032】実施例9

ガラス製の反応器に、実施例1で用いたゼオライトベータ触媒4.50 g及び2,6-DMN(純度99.9%)18.00 gを仕込み(触媒濃度20.0%)、窒素雰囲気中で攪拌しながら常圧下*40

*170℃で第1回の異性化反応を行なった。5時間反応後、120℃に冷却してトルエン(特級品)210 gを添加し、濾過して触媒を回収し、濾液はガスクロマトグラフィーにより分析した。回収した触媒から真空下に付着トルエンを除去した後、反応器に仕込み、第1回目と同様の操作により第2回の異性化反応を5時間行なった。

【0033】第2回の反応後、上記と同様に触媒を回収し、この触媒を使用して第3回の異性化反応を5時間実施した。第1回~第3回の各反応開始から3時間後及び5時間後における2,6族内の組成、平衡到達転化率(XAe)及び1,5-DMNの平衡到達率等を表3に示した。

【0034】

【表3】

	実 施 例 9					
	第 1 回 目		第 2 回 目		第 3 回 目	
原 料	2,6-DMN		2,6-DMN		2,6-DMN	
触媒濃度(wt%)	20.0		20.0		20.0	
反応温度(℃)	170		170		170	
反応時間(h r)	3	5	3	5	3	5
生成物分布(wt%)						
MMN+TMN	0.3	0.6	0.2	0.4	0.1	0.2
2,6族DMN	99.5	98.6	99.6	99.5	99.8	99.5
2,6族以外DMN	0.1	0.7	0.1	0.1	0.0	0.2
その他	0.1	0.1	0.1	0.0	0.1	0.1
2,6族内DMN分布(%)						
2,6-DMN	51.5	52.0	51.5	51.4	51.7	51.3
1,6-DMN	42.7	42.1	42.7	42.6	42.7	42.7
1,5-DMN	5.8	5.9	5.8	6.0	5.7	6.0
平衡到達転化率(%)	101.4	100.4	101.4	101.6	101.0	101.7
(*)平衡到達率(%)	102.7	104.2	103.4	106.7	100.7	106.1

【0035】表3中の(*)印は生成1,5-DMNの平衡到達率を示す。表3に示すように、第1回から第3回の何れの反応の場合も、反応開始から3時間後には1,5-DMN平衡到達率が100%に達しており、また、2,6族以外のDMN異性体や、MMN及びTMN等の不均化物の生成も極めて僅少であつた。また、上記繰り返し異性化反応の間、触媒の実質的な活性低下は観察されなかった。

【0036】

【発明の効果】本発明によれば、常圧下、低温度での容*

* 易な操作により、族間異性化反応及び不均化反応が大幅に抑制され、同族内のジアルキルナフタレン異性体混合物を極めて効率よく得ることができる。また、2,6-ジアルキルナフタレンのような特定の異性体を連続的に製造する場合、リサイクル量の低減が可能であり、加えて低温で異性化できるため保温、加熱等のエネルギーコストの節減に役立つ。更に、触媒へのコーク質の付着もなく、工業的に異性化反応を実施することができる。